

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-298433  
(43)Date of publication of application : 10.11.1998

(51)Int.CI. C08L 83/04  
C08J 5/18  
C08K 3/04

(21)Application number : 09-110988 (71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC WORKS LTD  
(22)Date of filing : 28.04.1997 (72)Inventor : FUKUYA NAOHITO  
KAJITA SUSUMU

## (54) SILICONE RUBBER COMPOSITION AND HEAT -RADIATING SHEET

### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a silicon rubber composition which gives a heat-radiating sheet having excellent flexibility and a high heat conductivity and to provide a heat-radiating sheet having a high heat conductivity.

**SOLUTION:** This composition comprises a silicone rubber and a filler, said filler being spherical graphite having an interplanar spacing of 3.30–3.40 &angst; or such a composition wherein the spherical graphite used is a combination of small-diameter spherical graphite having a mean particle diameter of 3–9  $\mu$  m with a large-diameter spherical graphite having a means particle diameter of above 9 to 50  $\mu$  m. The heat-radiating sheet is prepared by molding either of the above compositions.

### LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 24.05.2000

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japanese Patent Office

(19) 日本国特許庁(JP)

# 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-298433

(43) 公開日 平成10年(1998)11月10日

(51) Int. Cl. 6  
C 08 L 83/04  
C 08 J 5/18 CFH  
C 08 K 3/04

F I  
C 08 L 83/04  
C 08 J 5/18 CFH  
C 08 K 3/04

審査請求 未請求 請求項の数 4

OL

(全7頁)

(21) 出願番号 特願平9-110988

(22) 出願日 平成9年(1997)4月28日

(71) 出願人 000005832

松下電工株式会社

大阪府門真市大字門真1048番地

(72) 発明者 福家 直仁

大阪府門真市大字門真1048番地松下電工株  
式会社内

(72) 発明者 梶田 進

大阪府門真市大字門真1048番地松下電工株  
式会社内

(74) 代理人 弁理士 佐藤 成示 (外1名)

(54) 【発明の名称】シリコーンゴム組成物及び放熱用シート

## (57) 【要約】

【課題】 柔軟性が優れていて、高熱伝導率である放熱用シートを得ることのできるシリコンゴム組成物を提供すること、及びこのシリコンゴム組成物を用いた柔軟性が優れていて、高熱伝導率である放熱用シートを提供すること。

【解決手段】 シリコーンゴムに充填材を配合してなるシリコーンゴム組成物において、充填材としてその結晶面間隔が3.30～3.40オングストロームである球状グラファイトを配合していることを特徴とするシリコーンゴム組成物。また、前記シリコーンゴム組成物において、前記の球状グラファイトとして、平均粒径が3～9μmの小粒径球状グラファイトと、平均粒径が9μmより大きく50μm以下である大粒径球状グラファイトとを併用していることを特徴とするシリコーンゴム組成物。放熱用シートは、前記の何れかのシリコーンゴム組成物を用いて成形してなる放熱用シート。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】シリコーンゴムに充填材を配合してなるシリコーンゴム組成物において、充填材としてその結晶面間隔が3.30～3.40オングストロームである球状グラファイトを配合していることを特徴とするシリコーンゴム組成物。

【請求項2】前記の球状グラファイトとして、平均粒径が3～9μmの小粒径球状グラファイトと、平均粒径が9μmより大きく50μm以下である大粒径球状グラファイトとを併用していることを特徴とする請求項1記載のシリコーンゴム組成物。

【請求項3】前記の小粒径球状グラファイトと共に使用する大粒径球状グラファイトの平均粒径が20～50μmであって、小粒径球状グラファイトの含有割合が、小粒径球状グラファイトと大粒径球状グラファイトの合計体積に対し20～80体積%であることを特徴とする請求項2記載のシリコーンゴム組成物。

【請求項4】請求項1から請求項3までの何れかに記載のシリコーンゴム組成物を用いて成形してなる放熱用シート。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、コンピュータのCPU（中央演算処理装置）や各種トランジスタ等の電子部品から発生する熱を放熱するために用いる放熱用シート等の製造に使用されるシリコーンゴム組成物及びこのシリコーンゴム組成物を用いた放熱用シートに関する。

## 【0002】

【従来の技術】近年、パソコン、ワークステーション等のクロック数の増加、集積度の増加に伴い、電子部品からの発熱量の増加が深刻な問題となっている。また、パワーICからの発熱についても問題となっている。これら電子部品からの発熱を効率よく放熱するための放熱器を設けることが一般的であり、この放熱器を設けるにあたっては、通常、電子部品と放熱器の間に放熱用シートを配置する。電子部品と放熱器の間に空隙が生じた場合、この空隙が熱伝導の大きな抵抗となるため、電子部品と放熱器の間に放熱用シートを配置して、放熱器の接合面の微少な反りやうねりに沿わせることによって、空隙が生じることを防ぐようしているのである。

【0003】放熱用シートとしては、柔軟性を持ったゴムシートや、両面に接着剤をコーティングしたテープ等があるが、その熱伝導率を上げるために、アルミナ〔熱伝導率(λ)=20W/mK〕や六方晶窒化ホウ素(h-BN)〔熱伝導率(λ)=62W/mK〕等の高熱伝導性の無機充填材をマトリックス樹脂に混合分散することが行われている。この場合のマトリックス樹脂の例としては、耐熱性に優れ、広い温度範囲で良好な圧縮復元性を示すシリコンゴムが知られている。

【0004】しかしながら、前記のような無機充填材を

シリコンゴムに分散する方法で熱伝導率を上げようとした場合、放熱用シートのゴム硬度で表される柔軟性が損なわれる傾向があるため、この方法による高熱伝導率化では不十分である場合があった。なお、放熱用シートに柔軟性が求められるのは以下の理由による。すなわち、電子部品と放熱器の間の空隙の低減を目的として、放熱器を放熱用シートを介して電子部品に取り付ける際には、適度な締め付け圧力をかけることが通常行われるが、放熱用シートのゴム硬度が高いと、電子部品あるいはそれを実装したプリント配線板に大きな荷重がかかり、故障を引き起こす原因となるからである。

【0005】そこで、マトリックス樹脂がシリコンゴムであり、JIS-K6301 Aで規定されたゴム硬度測定法によるゴム硬度で代表される柔軟性が優れていて、且つ、高熱伝導率である放熱用シートの開発が望まれている。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明は上記のような事情に鑑みてなされたものであって、その目的とするところは、マトリックス樹脂がシリコンゴムであり、ゴム硬度で代表される柔軟性が優れていて、且つ、高熱伝導率である放熱用シートを得ることのできるシリコンゴム組成物を提供すること、及びこのシリコンゴム組成物を用いた柔軟性が優れていて、且つ、高熱伝導率である放熱用シートを提供することにある。

## 【0007】

【課題を解決するための手段】請求項1に係る発明のシリコーンゴム組成物は、シリコーンゴムに充填材を配合してなるシリコーンゴム組成物において、充填材としてその結晶面間隔が3.30～3.40オングストロームである球状グラファイトを配合していることを特徴とする。

【0008】請求項2に係る発明のシリコーンゴム組成物は、請求項1記載のシリコーンゴム組成物において、前記の球状グラファイトとして、平均粒径が3～9μmの小粒径球状グラファイトと、平均粒径が9μmより大きく50μm以下である大粒径球状グラファイトとを併用していることを特徴とする。

【0009】請求項3に係る発明のシリコーンゴム組成物は、請求項2記載のシリコーンゴム組成物において、前記の小粒径球状グラファイトと共に使用する大粒径球状グラファイトの平均粒径が20～50μmであって、小粒径球状グラファイトの含有割合が、小粒径球状グラファイトと大粒径球状グラファイトの合計体積に対し20～80体積%であることを特徴とする。

【0010】請求項4に係る発明の放熱用シートは、請求項1から請求項3までの何れかに記載のシリコーンゴム組成物を用いて成形してなる放熱用シートである。

【0011】本発明のシリコーンゴム組成物では、充填材としてその結晶面間隔が3.30～3.40オングストロームである球状グラファイトを配合するが、この作

用について説明する。グラファイトはその密度が2.3 g/cm<sup>3</sup>以下であるので充填材として使用すると、高熱伝導率化のための充填材として従来使用されているアルミナ（密度：3.98 g/cm<sup>3</sup>）を用いた場合に比べ密度が小さい放熱シートが得られるので電子機器等の軽量化に寄与することができる。そして、結晶面間隔が3.30～3.40 オングストロームであるグラファイトは高熱伝導率化に寄与する。さらに、球状グラファイトであることは、ファイバー等の非球状のものに比べ、同一充填量であれば、得られる放熱シートのゴム硬度を小さくできる作用がある。これらの作用のため、充填材としてその結晶面間隔が3.30～3.40 オングストロームである球状グラファイトを配合すると、密度が小さく、ゴム硬度が低く、且つ、高熱伝導率である放熱用シートを得ることが可能となる。

【0012】さらに、本発明のシリコーンゴム組成物を配合する際に、平均粒径が3～9 μmの小粒径球状グラファイトと、平均粒径が9 μmより大きく50 μm以下である大粒径球状グラファイトとを併用すると、ゴム硬度がより低い放熱用シートを得ることが可能となる。

【0013】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態を説明する。

【0014】本発明に係るシリコーンゴム組成物で、シリコーンゴムをマトリックス樹脂としいるのは、シリコーンゴムは耐熱性に優れ、広い温度範囲で良好な圧縮復元性を示すので、放熱用シートのマトリックス樹脂として望ましい素材だからである。シリコーンゴムとしては、二液型や一液型の液状タイプのシリコーンゲル及びシリコーンゴム、並びに熱加硫型のシリコーンゴム等の各種のシリコーンゴムを使用することができる。

【0015】そして、本発明に係るシリコーンゴム組成物はシリコーンゴムと共に結晶面間隔が3.30～3.40 オングストロームである球状グラファイトを含有している。球状グラファイトは、例えば石炭ピッチ系炭素であるメソフェイズ小球体と呼ばれる炭素を1600～3000℃で熱処理することによりグラファイト化して得ることができる。なお、このような方法で得た球状グラファイトはメソカーボンマイクロビーズと称されている。

【0016】グラファイトの結晶の基本的構造は、六炭素環を基本骨格とし、結晶面上にこの基本骨格が連なっている網目平面が平行に積み重なった層状構造である。この層状構造の層間隔は結晶面間隔と呼ばれ、グラファイト化するときの熱処理温度や出発原料の種類等によって異なる値となる。ここで、球状グラファイトの結晶面間隔について、図1の切り欠き断面図を参照して説明する。モデル図である図1に示すように、球状グラファイトは基本骨格が連なっている網目状平面1が平行に積み重なった層状構造を有していて、この網目状平面1、1

間の間隔が結晶面間隔2である。この結晶面間隔の値は、X線回折法により、d(002)面の間隔を測定して得ることができる。

【0017】そして、グラファイトの熱伝導率については、基本骨格が連なっている網目状平面と平行する方向の方が、網目状平面に垂直な方向よりも高いことが知られている。すなわち、網目状平面と平行する方向の熱伝導率は1000～1500 W/mKにも達するが、網目状平面に垂直な方向の熱伝導率は、平行する方向の熱伝導率の1/200～1/400程度であると言われている。さらに、グラファイト化するときの熱処理温度が高いほど結晶面間隔は狭くなり、熱伝導率が高くなる。例えば、1000℃程度の熱処理では結晶面間隔は3.50～3.60 オングストロームであり、2000℃の熱処理では結晶面間隔は3.40～3.50 オングストロームであり、網目状平面と平行する方向の熱伝導率は1000～1500 W/mKであるというデータもある。本発明に係るシリコーンゴム組成物で使用する球状グラファイトは、上記の結晶面間隔が3.30～3.40 オングストロームと狭い、結晶化度の高いグラファイトであるので、放熱シートの高熱伝導率化に寄与することができる。結晶面間隔の下限数値を3.30 オングストロームとしたのは、これより結晶面間隔の狭い球状グラファイトは入手が困難であるからである。そして、結晶面間隔が3.40 オングストロームを超えると、高熱伝導率化を達成することが不十分となるので、上限を3.40 オングストロームとしている。

【0018】また、本発明に係るシリコーンゴム組成物で使用する球状グラファイトは、その形状がほぼ球状であるので、ファイバー等の他の形状に比べ、同一充填量であれば、得られる放熱シートのゴム硬度を小さくできる作用がある。ここで言う球状とは、真球状に限定するものではなく、ほぼ球状であれば良い。

【0019】さらに、前記したようにグラファイトはその密度が低いので、グラファイトを充填材として使用すると、従来使用されているアルミナを用いた場合に比べ密度が小さい放熱シートを得ることができるというメリットがある。

【0020】また、本発明のシリコーンゴム組成物に配合する球状グラファイトとして、平均粒径が3～9 μmの小粒径球状グラファイトと、平均粒径が9 μmより大きく50 μm以下である大粒径球状グラファイトとを併用すると、ゴム硬度がより低い放熱用シートを得ることが可能となるので望ましい。これは、粒径の異なる球状グラファイトを混合して使用することにより、最密充填構造に近い充填が達成できるためと考えられる。小粒径球状グラファイトの平均粒径を3～9 μmとする理由

は、3 μm未満のものは得られる放熱用シートのゴム硬度が高くなる傾向があるため3 μm以上であることが好ましく、また9 μmを小粒径球状グラファイトと大粒径球状グラファイトの境界値として採用したためである。そして、大粒径球状グラファイトの平均粒径を50 μm以下とする理由は、50 μmを超える球状グラファイトの入手が困難であるからである。そして、大粒径球状グラファイトの平均粒径が20～50 μmであって、小粒径球状グラファイトの含有割合が、小粒径球状グラファイトと大粒径球状グラファイトの合計体積に対し20～80体積%であると、ゴム硬度が低い放熱用シートを得ることがより確実になるのでより好ましい。これは、粒径の異なる小粒径球状グラファイトと大粒径球状グラファイトの粒径の差がこの程度ある方が、最密充填構造に近い充填がより確実に達成できるためと考えられる。また、小粒径球状グラファイトと大粒径球状グラファイトの含有割合については上記の範囲内であることがゴム硬度が低い放熱用シートを得るには有効であり、このことは下記の実施例における結果からも確認された。

【0021】本発明の放熱用シートは、請求項1から請求項3までの何れかに記載のシリコーンゴム組成物を用いて成形してなる放熱用シートであるので、柔軟性が優れていて、且つ、高熱伝導率である放熱用シートとなる。放熱用シートに成形する方法については、特に制限はなく、シリコーンゴム組成物をそのまま成形したり、\*

表1

	実施例1		実施例2	比較例1		比較例2	比較例3	比較例4
	実施例1a	実施例1b		比較例1a	比較例1b			
充填材の種類	球状グラファイト		球状グラファイト	グラファイトファイバー		球状グラファイト	球状グラファイト	アルミナ粉
平均粒子径又は平均長さ(μm)	6	6	700		6	6	6	
グラファイト化のための熱処理温度(°C)	2800	2600	2800		2000	1000	—	
結晶面間隔(オングストローム)	3.37	3.40	3.37		3.43	3.57	—	
充填材の充填量(体積%)	40	50	50	40	50	50	50	50
熱伝導率(W/mK)	1.0	1.6	1.5	1.3	2.9	1.0	0.7	1.0
ゴム硬度	1未満	5	5	8	24	5	5	8
密度(g/cm³)	1.5	1.6	1.6	1.5	1.6	1.6	1.4	2.5

【0025】表1の結果から次のことが確認された。

(1) 充填材としてその結晶面間隔が3.30～3.450

\*あるいは、一旦ガラス布等の基材にシリコーンゴム組成物を含浸した後、成形するようにしてもよい。

#### 【0022】

##### 【実施例】

(実施例1、実施例2、比較例1～比較例4)シリコーンゴムとして、二液型の液状タイプの付加反応型シリコーンゲル(東芝シリコーン社製、品番TSE-3070)を使用し、このシリコーンゲルに、表1に示す配合量で球状グラファイト、グラファイトファイバー又はアルミナを充填材として配合し、混練してシリコーンゴム組成物を得た。充填材の充填量は表1に示す量(体積%)としたが、この体積%は各原料の比重と仕込み重量とを基に算出した値である。そして、使用した球状グラファイト、グラファイトファイバーのグラファイト化のための熱処理温度、結晶面間隔を表1に示す。

【0023】上記で、得たシリコーンゴム組成物を離型フィルムで挟み込み、プレス成形(圧力50kg/cm²)により2mm厚の成形体とした。この成形体を140℃、1時間の条件で硬化させて放熱シートを得た。得た放熱シートについて、熱伝導率、ゴム硬度及び密度を測定し、得た結果を表1に示す。なお、熱伝導率の測定は定常法平板比較法で行い、ゴム硬度の測定はJIS-K6301Aに基づいて行った。

#### 【0024】

##### 【表1】

0オングストロームである球状グラファイトを配合した実施例1、2とアルミナを配合した比較例4の比較によ

り、同一充填量であっても実施例1、2の放熱用シートは比較例4のそれより、密度が低く、高熱伝導率であり、且つゴム硬度が低い。

(2) 結晶面間隔が3.30～3.40オングストロームである球状グラファイトを配合した実施例1、2は、形状が非球状であるグラファイトファイバーを配合した比較例1に比べ、同一充填量であればゴム硬度が低い。

(3) 結晶面間隔が3.30～3.40オングストロームである球状グラファイトを配合した実施例1、2は、結晶面間隔がそれぞれ3.43、3.57である球状グラファイトを配合した比較例2、3に比べ、同一充填量であれば高熱伝導率である。

【0026】(実施例3、比較例5)実施例3は、充填材の充填量を55体積%とし場合の例であり、球状グラファイトとして結晶面間隔が3.37オングストローム、平均粒径が6μmのものと、結晶面間隔が3.37\*

10

\*オングストローム、平均粒径が25μmのものの2種類を混合使用した際の混合効果を調べた例である。この実施例3では、使用する球状グラファイトの種類及びその混合割合を表2に示すようにした他は、実施例1と同様にしてシリコン樹脂組成物及び放熱シートを作製し、また得た放熱シートの性能を測定した。得られた結果を表2に示すと共に、平均粒径の異なる球状グラファイトを併用した場合の混合割合とゴム硬度及び熱伝導率の関係を示すグラフを図2に示した。

【0027】比較例5は、充填材として、平均粒径が20μmのアルミナを表2に示す配合量で配合した他は、実施例3と同様にしてシリコン樹脂組成物及び放熱シートを作製し、また得た放熱シートの性能を測定した。得た結果を表2に示す。

【0028】

【表2】

表2

	実施例3							比較例5
	実施例3a	実施例3b	実施例3c	実施例3d	実施例3e	実施例3f	実施例3g	
充填材の種類	熱処理温度が2800℃の球状グラファイト (小粒径品及び/又は大粒径品)							アルミナ粉
結晶面間隔 (オングストローム)	3.37							—
球状グラファイト中の 平均粒径6μm品の割合 (体積%)	0	20	25	50	75	80	100	—
球状グラファイト中の 平均粒径25μm品の割合 (体積%)	100	80	75	50	25	20	0	—
充填材の 充填量 (体積%)	55	55	55	55	55	55	55	55
熱伝導率 (W/mK)	1.9	1.9	1.9	1.9	1.9	1.9	1.9	1.4
ゴム硬度	10	5	4	4	5	5	12	14
密度 (g/cm <sup>3</sup> )	1.7	1.7	1.7	1.7	1.7	1.7	1.7	2.6

【0029】実施例3と比較例5を比較すると、充填材としてその結晶面間隔が3.37オングストロームである球状グラファイトを配合した実施例3は比較例5より、ゴム硬度が低く、高熱伝導率であり、且つ密度が低いことが確認された。

【0030】また、図2でわかるように、球状グラファイトとして、平均粒径が6μmのものと、25μmのものとを混合使用した場合、小粒径球状グラファイトの含有割合が、小粒径球状グラファイトと大粒径球状グラフ

イトの合計体積に対し20～80体積%であるとよりゴム硬度が低い放熱シートが得られることが確認された。

【0031】(実施例4)実施例4は、充填材の充填量を55体積%とした場合の例であり、球状グラファイトとして結晶面間隔が3.37オングストロームで、平均粒径が6μmのものと、結晶面間隔が3.37オングストロームで、平均粒径が35μmのものの2種類を混合使用した際の混合効果を調べた例である。この実施例4

では、使用する球状グラファイトの種類及びその混合割合を表3に示すようにした他は、実施例1と同様にしてシリコン樹脂組成物及び放熱シートを作製し、また得た放熱シートの性能を測定した。得られた結果を表3に示す。

【0032】  
【表3】

表3

	実施例4				
	実施例4a	実施例4b	実施例4c	実施例4d	実施例4e
充填材の種類	熱処理温度が2800°Cの球状グラファイト（小粒径品及び／又は大粒径品）				
結晶面間隔（オングストローム）	3.37				
球状グラファイト中の平均粒径6μm品の割合（体積%）	0	20	50	80	100
球状グラファイト中の平均粒径35μm品の割合（体積%）	100	80	50	20	0
充填材の充填量（体積%）	55	55	55	55	55
熱伝導率（W/mK）	1.9	1.9	1.9	1.9	1.9
ゴム硬度	10	4	3	5	12
密度（g/cm <sup>3</sup> ）	1.7	1.7	1.7	1.7	1.7

【0033】表3でわかるように、球状グラファイトとして、平均粒径が6μmのものと、35μmのものとを混合使用した際には、小粒径球状グラファイトの含有割合が、小粒径球状グラファイトと大粒径球状グラファイトの合計体積に対し20～80体積%であるとよりゴム硬度が低い放熱シートが得られることが確認された。

#### 【0034】

【発明の効果】本発明のシリコーンゴム組成物は、充填材としてその結晶面間隔が3.30～3.40オングストロームである球状グラファイトを配合しているので、本発明のシリコーンゴム組成物を使用すると、高熱伝導率化のための充填材として従来使用されているアルミナを用いた場合に比べ、密度が小さく、高熱伝導率であって、ゴム硬度の小さい放熱シートを得ることができる。

【0035】請求項2及び請求項3に記載の発明のシリコーンゴム組成物では、シリコーンゴム組成物に配合する球状グラファイトとして、平均粒径が3～9μmの小粒径球状グラファイトと、平均粒径が9μmより大きく50μm以下である大粒径球状グラファイトとを併用するので、ゴム硬度がより低い放熱用シートを得ることが

30 可能となる。

【0036】本発明の放熱用シートは、請求項1から請求項3までの何れかに記載のシリコーンゴム組成物を用いて成形してなる放熱用シートであるので、高熱伝導率化のための充填材として従来使用されているアルミナを用いた放熱用シートに比べ、密度が小さく、高熱伝導率であって、ゴム硬度の小さい放熱シートとなる。従つて、本発明の放熱用シートは、パソコン等の電子機器にとって有用な材料となる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】球状グラファイトの結晶面間隔を説明するための、モデル的な切り欠き断面図である。

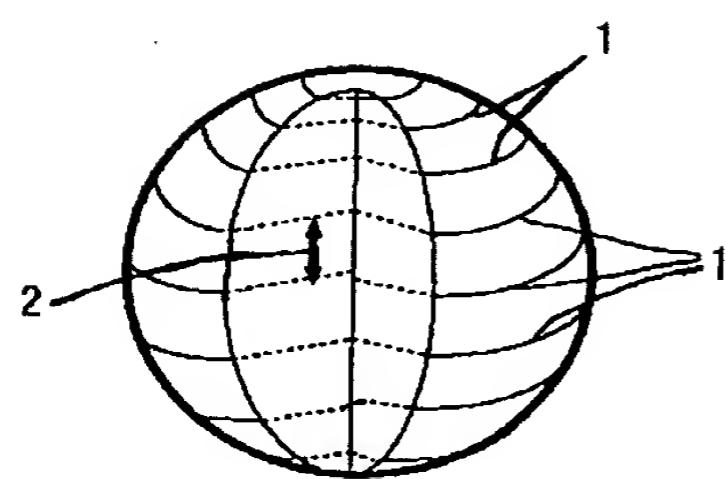
【図2】実施例3における、平均粒径の異なる球状グラファイトを併用した場合の小粒径球状グラファイトの混合割合（体積%）とゴム硬度及び熱伝導率の関係を示すグラフである。

#### 【符号の説明】

1 網目状平面

2 結晶面間隔

【図1】



【図2】

